

# بررسی افزودنی اکسید روی بر خواص دی الکتریکی و ریز ساختار سرامیک اکسید تیتانیوم

فصلنامه  
سرامیک ایران

ساناز حامی، هاجر احمدی مقدم\*

گروه مهندسی مواد، دانشکده فنی و مهندسی، دانشگاه شهرکرد



نویسنده اول:

مهندس ساناز حامی

نویسنده مسئول:

دکتر هاجر احمدی مقدم

گروه مهندسی مواد، دانشکده فنی و

مهندسی، دانشگاه شهرکرد

نوع مقاله: پژوهشی

صفحه‌های: ۳۱ تا ۳۹

شاپا چاپی: ۱۷۳۵-۳۳۵۱

شاپا الکترونیکی: ۲۷۸۳-۳۰۹۷

زبان نشریه: فارسی

دسترس پذیر در نشانی:

www.JICERS.ir

تاریخ دریافت:

۱۴۰۰/۰۷/۱۰

تاریخ پذیرش:

۱۴۰۰/۸/۰۶

DOR: 20.1001.1.17353351.1400.17.0.5.4

**چکیده:** در سال‌های اخیر، تحقیقات در مورد مواد با ثابت دی الکتریک بالا از جمله اکسید تیتانیوم به دلیل پتانسیل برای کاربردهای میکرو الکترونیک مدرن و ذخیره کردن انرژی با چگالی بالا افزایش یافته است. هدف این تحقیق بررسی اثرات اضافه کردن افزودنی پذیرنده، اکسید روی بر خواص دی الکتریک و ریز ساختار سرامیک اکسید تیتانیوم است. مقادیر ۰/۵، ۱ و ۲ درصد وزنی از افزودنی به اکسید تیتانیوم اضافه و نمونه‌ها با روش پرس تک محور پودر و سپس تف جوشی در دمای  $1420^{\circ}\text{C}$  به مدت ۵ ساعت تهیه شدند. خواص نمونه‌ها شامل چگالی، فازها، ثابت دی الکتریک، اتلاف دی الکتریک و ریز ساختار مورد بررسی قرار گرفت. نتایج نشان داد اکسید روی منجر به بهبود چگالش اکسید تیتانیوم می‌گردد. از نتایج آزمون پراش اشعه ایکس مشخص شد هیچ گونه فاز ثانویه و ناخالصی در نمونه های حاوی افزودنی وجود ندارد که می‌تواند بیان گر جایگزینی افزودنی در شبکه کریستالی اکسید تیتانیوم و تشکیل محلول جامد جانشینی باشد. افزودنی اکسید روی منجر به کاهش ثابت دی الکتریک و کاهش اتلاف دی الکتریک اکسید تیتانیوم گردید. افزودنی اکسید روی باعث رشد دانه و افزایش اندازه دانه سرامیک اکسید تیتانیوم شد. ریز ساختار با اندازه دانه بسیار بزرگ و امکان ایجاد جاهای خالی اکسیژن با استفاده از افزودنی اکسید روی می‌تواند منجر به کاهش ثابت دی الکتریک سرامیک اکسید تیتانیوم شوند.

**کلمات کلیدی:** اکسید تیتانیوم، اکسید روی، چگالی، ثابت دی الکتریک، ریز ساختار.

## ۱- مقدمه

در سال‌های اخیر، مواد با ثابت دی الکتریک بیش از ۱۰۰۰ که به عنوان مواد با ضریب گذردهی بالا<sup>۱</sup> (CP) شناخته می‌شوند، به دلیل کاربرد در زمینه‌های مختلف از جمله میکروالکترونیک، مخابرات، آنتن و رادارها مورد توجه قرار گرفته‌اند. از جمله مواد CP می‌توان به تیتانات باریم و یا سرامیک‌های بر پایه اکسید نیکل اشاره نمود [۱، ۲]. در دهه‌های اخیر، تولید و کاربرد اکسید تیتانیوم ( $\text{TiO}_2$ ) به دلیل در دسترس بودن، پایداری شیمیایی، غیرسمی بودن، ویژگی‌های نوری- الکتریکی، هزینه کم و خواص فوتو کاتالیستی به طور پیوسته در حال افزایش است. اکسید تیتانیوم هم‌چنین به عنوان ماده دی الکتریک با ثابت دی الکتریک بالا توجه زیادی را به خود جلب کرده است [۳]. اکسید تیتانیوم به شکل روتایل ثابت دی الکتریک بالایی را نشان می‌دهد و می‌تواند به عنوان یک جزء در خازن‌هایی با بازدهی بالا استفاده شود. اکسید تیتانیوم با مقدار اتلاف دی الکتریک کم و مقادیر ثابت دی الکتریک بالا

<sup>۱</sup> Colossal Permittivity



برای کاربرد در الکترونیک مدرن به شدت مورد نیاز است [۲].

تأثیر دوپنت‌های مختلف بر خواص سرامیک  $\text{TiO}_2$  مورد بررسی قرار گرفته است [۴-۶]. هيو و همکارانش خواص دی‌الکتریک مناسب برای  $\text{TiO}_2$  روتایل دوپ شده با (Nb+In) شامل ضریب گذردهی بالا، اتلاف دی‌الکتریک کم و وابستگی بسیار کم دمایی در محدوده وسیع دمایی گزارش کردند و از مکانیزم خازنی لایه سد داخلی موانع شاتکی<sup>۱</sup> برای توجیه ضریب گذردهی بالا استفاده نمودند [۷]. خواص دی‌الکتریک عالی مشاهده شده در  $\text{TiO}_2$  روتایل دوپ شده با ارائه مدل جدیدی که دوقطبی‌های عیب الکترون قفل شده<sup>۲</sup> نامگذاری شد، توجیه گردید [۸]. استفاده همزمان از دوپنت پذیرنده  $\text{Sc}^{3+}$  و دهنده  $\text{Nb}^{5+}$  و هم چنین دمایی تفجوشی بر خواص  $\text{TiO}_2$  نشان داد که در دماهای تفجوشی بالا به دلیل وجود جاهای خالی اکسیژن اتلاف دی‌الکتریک افزایش و ثابت دی‌الکتریک کاهش می‌یابد.  $\text{TiO}_2$  دوپ شده با (Nb+Sc) از نظر الکتریکی غیرهمگن گزارش گردید که شامل دانه‌های نیمه‌هادی و لایه‌های عایق با مقاومت الکتریکی بسیار بالا است. خواص دی‌الکتریک بالا در این سرامیک به پلاریزاسیون بین سطحی در لایه‌های عایق نسبت داده شد [۹]. یو و همکارانش بیان کردند تشکیل جفت  $\text{Nb}^{5+}$ - $\text{Al}^{3+}$  باعث کاهش غلظت جاهای خالی اکسیژن و در نتیجه کاهش هدایت الکتریکی و اتلاف دی‌الکتریک سرامیک  $\text{TiO}_2$  روتایل دوپ شده با (Nb+Al) خواهد شد [۸]. کاهش در مقدار ثابت دی‌الکتریک  $\text{TiO}_2$  با افزایش مقدار دوپنت Fe به افزایش هدایت الکتریکی آن نسبت داده شده است [۳]. هدف از این مطالعه بررسی تأثیر افزودنی اکسید روی ( $\text{ZnO}$ ) با نقش پذیرنده بر خواص سرامیک  $\text{TiO}_2$  است. به این منظور مقادیر مختلف  $\text{ZnO}$  (۰/۵، ۱ و ۲ درصد وزنی) به  $\text{TiO}_2$  اضافه گردید. تأثیر  $\text{ZnO}$  بر خواص دی‌الکتریک و ریزساختار سرامیک  $\text{TiO}_2$  مورد مطالعه قرار گرفت.

## ۲- فعالیت‌های تجربی

مواد اولیه مورد استفاده در این پژوهش پودر نانواکسید تیتانیوم (شرکت مرک با درجه خلوص ۹۹/۹٪) و پودر نانو اکسید روی (شرکت مرک با درجه خلوص ۹۹/۹٪) بود.  $\text{ZnO}$  به مقادیر ۰/۵، ۱ و ۲ درصد وزنی به  $\text{TiO}_2$  افزوده شد. به منظور دستیابی به مخلوط یکنواخت از افزودنی با پودر اصلی از دستگاه همگن‌ساز آلتراسونیک با قدرت ۲۰ کیلوهرتز به مدت زمان نیم‌ساعت و محیط اتانول استفاده شد. به منظور بهبود استحکام خام نمونه‌ها از چسب آلی پلی‌وینیل الکل با غلظت ۲۰ درصد به مقدار ۶ درصد وزنی پودر استفاده گردید. پس از مخلوط کردن یکنواخت مخلوط پودرها با چسب، به منظور یکنواخت شدن رطوبت به مدت ۲۴ ساعت در کیسه نایلونی دربسته نگهداری شدند. نمونه‌های دیسکی شکل با قطر ۱۳ mm و ضخامت در حد ۲ mm با روش پرس تک محوره و فشار ۲۰۰ MPa تهیه گردید. برای خروج آرام چسب، نمونه‌های ابتدا به مدت ۲ ساعت در دمای  $700^\circ\text{C}$  حرارت داده شدند. عملیات تفجوشی نمونه‌ها در دمای  $1420^\circ\text{C}$  به مدت ۴ ساعت با سرعت حرارت دهی  $5^\circ\text{C}/\text{min}$  انجام گرفت. لازم به ذکر است این دما و زمان بر اساس چگالی اندازه‌گیری شده به عنوان دمای بهینه تفجوشی انتخاب گردید. با استفاده از روش ارشمیدس بر اساس استاندارد ASTM C-373 چگالی نمونه‌ها اندازه‌گیری شد. برای بررسی آنالیز فازی نمونه‌ها از استفاده دستگاه پراش اشعه x (XRD) مدل Asenware AW-XDM 300 تشعشع Cu-ka با طول موج  $1.542 \text{ \AA}$  استفاده گردید. از چسب نقره برای الکتروگذاری سطح نمونه‌ها برای اندازه‌گیری خواص دی‌الکتریک استفاده گردید. با استفاده از دستگاه LCR-meter مدل OCT1010 خواص دی‌الکتریکی نمونه‌ها در دمای اتاق اندازه‌گیری شد. ریز ساختار نمونه‌ها با دستگاه میکروسکوپ الکترونی روبشی (FE-SEM, model 450 FEG, FEI QUANTA) بررسی گردید.

## ۳- نتایج و بحث

نتایج مربوط به چگالی ظاهری، درصد تخلخل باز و درصد چگالی نسبی نمونه‌ها در جدول ۱ مشخص شده است. طبق نتایج، افزودنی  $\text{ZnO}$  باعث افزایش چگالی  $\text{TiO}_2$  می‌شود. بیش‌ترین چگالی نسبی حدود ۹۸/۲ درصد برای نمونه حاوی ۱ درصد وزنی  $\text{ZnO}$  حاصل گردید. طبق معادله ۱، در اثر جایگزینی یون های  $\text{Zn}^{2+}$  به جای  $\text{Ti}^{4+}$  در شبکه اکسید تیتانیوم، برای حفظ خنثایی

<sup>1</sup> Internal Barrier Layer Capacitance (IBLC) of Schottky barriers

<sup>2</sup> electron-pinned defect dipoles

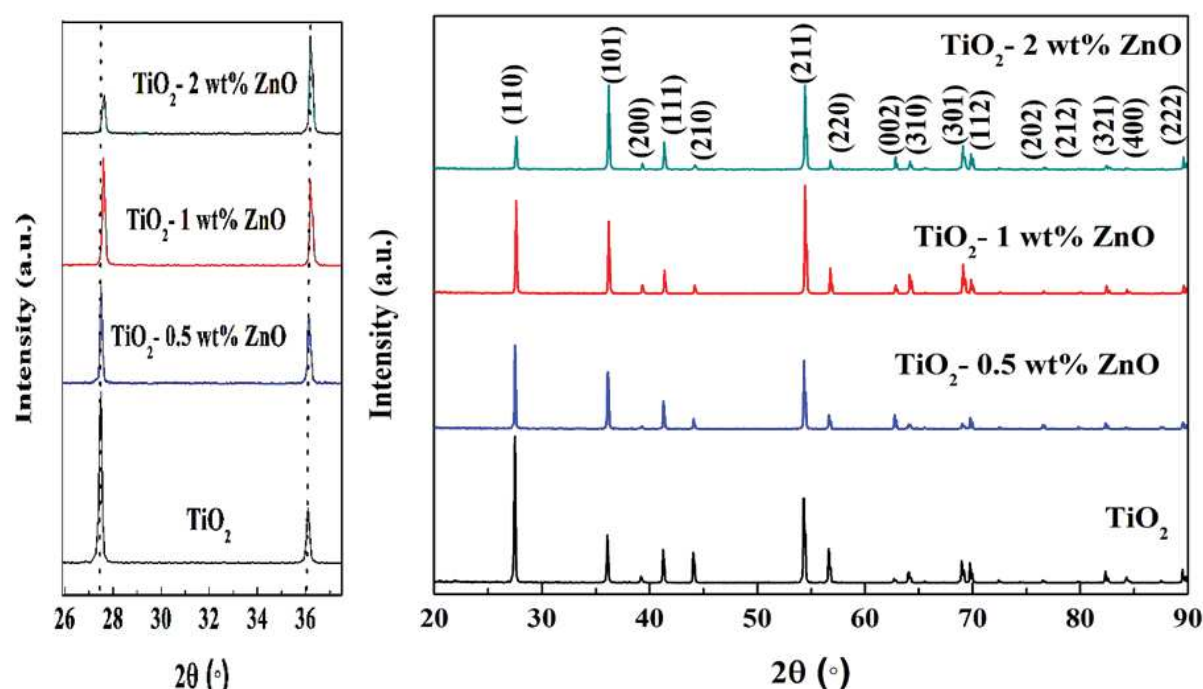
الکتریکی در شبکه کریستالی امکان ایجاد عیب جای خالی اکسیژن وجود دارد. وجود عیب جای خالی اکسیژن به فرآیند نفوذ در طی تفجوشی کمک خواهد کرد و به این صورت منجر به بهبود چگالش خواهد شد [۱۰].



جدول ۱- تاثیر افزودنی ZnO بر چگالی و درصد تخلخل اکسید تیتانیوم.

ترکیب	چگالی ظاهری (g/cm <sup>3</sup> )	درصد چگالی نسبی	% درصد تخلخل باز
TiO <sub>2</sub>	۴/۰۸	۹۶/۴	۱/۴۰
TiO <sub>2</sub> + 0.5 wt% ZnO	۴/۱۲	۹۷/۴	۰/۶۴
TiO <sub>2</sub> + 1 wt% ZnO	۴/۱۵	۹۸/۲	۰/۵۲
TiO <sub>2</sub> + 2 wt% ZnO	۴/۱۴	۹۸/۲	۰/۵۶

نتایج الگوهای XRD مربوط به سرامیک اکسید تیتانیوم حاوی درصد متفاوت ZnO در شکل ۱ مشاهده می شود. پیک های تفرق شناسایی شده مربوط به اکسید تیتانیوم روتایل با ساختار تتراگونال و گروه فضایی P42/mnm مطابق با الگوی مرجع با کد JCPDS No 00-004-0551 هستند. در الگوهای XRD، هیچ گونه پیک اضافی و ناخالصی مشاهده نمی شود. که می تواند به دلیل مقادیر کم افزودنی مورد استفاده باشد [۹]. مقدار شعاع یونی Zn<sup>2+</sup> ۰/۷۴ Å و شعاع یونی Ti<sup>4+</sup> ۰/۷۵ Å است. بنابراین امکان جایگزینی یون های Zn<sup>2+</sup> به جای یون های Ti<sup>4+</sup> در شبکه کریستالی اکسید تیتانیوم و تشکیل محلول جامد جانشینی وجود دارد.

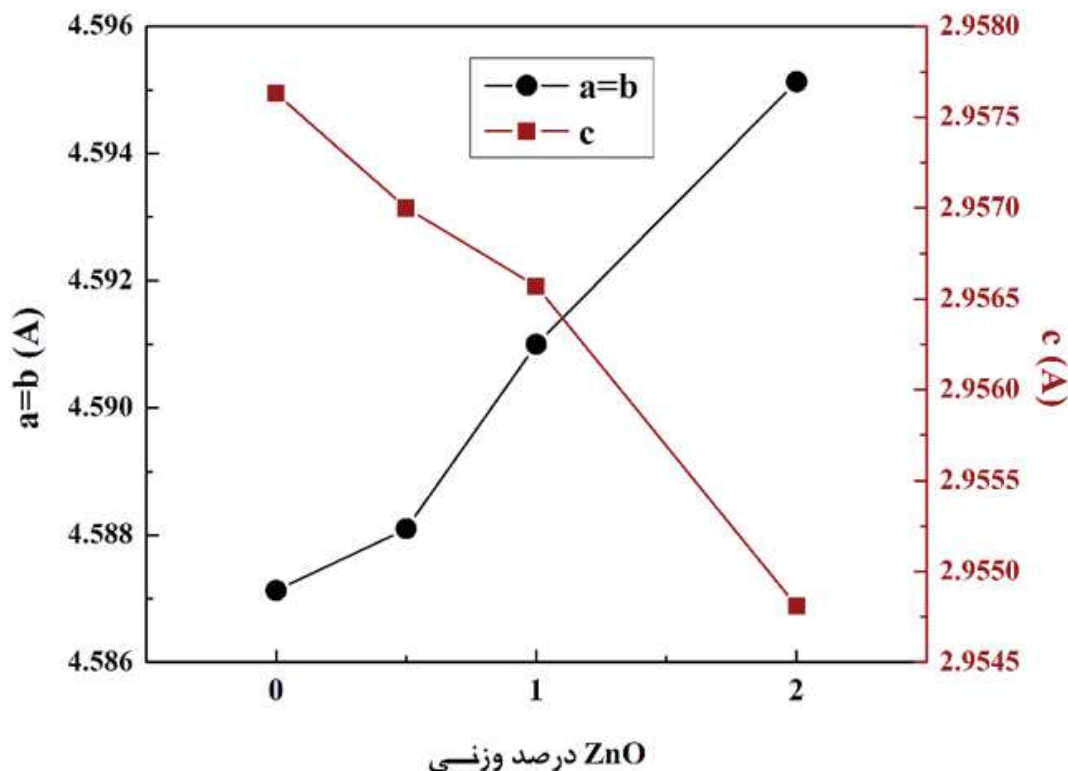


شکل ۱- الگوهای XRD مربوط به اکسید تیتانیوم حاوی درصد متفاوت ZnO

طبق شکل ۲، پیک های XRD مربوط به نمونه های حاوی افزودنی ZnO نسبت به نمونه TiO<sub>2</sub> خالص به مقدار کم به سمت زوایای تفرق بالاتر جابجا شده اند. با توجه به اینکه شعاع یونی Zn<sup>2+</sup> کمی کوچک تر از Ti<sup>4+</sup> است، بنابراین در اثر جایگزینی یون های با شعاع کوچک تر، فاصله بین صفحات اتمی در ساختار TiO<sub>2</sub> کاهش می یابد و منجر به جابجایی کم پیک ها به سمت زوایای بالاتر خواهد شد [۶]. عوامل زیادی از جمله فاکتور پلاریزاسیون، فاکتور ساختاری، فاکتور جذب و فاکتور دما بر شدت پیک های تفرق تاثیر دارند. همچنین عیوب کریستالی مانند جاهای خالی، نابجایی ها و اتم های جانشینی نیز بر مقدار شدت پیک ها موثر هستند [۱۱]. کاهش در شدت پیک ها به ویژه پیک مربوط به صفحات (۱۱۰) با افزایش مقدار افزودنی ها توسط محققان دیگر نیز گزارش شده است. این کاهش در شدت پیک به وجود عیوب مانند جاهای خالی اکسیژن و اتم های جانشینی نسبت داده شده است [۱۲].

۱۳]. هم چنین ایجاد به هم ریختگی بیش تر در شبکه کریستالی در اثر افزایش مقدار اتم های جانشینی با شعاع متفاوت نیز عامل کاهش شدت پیک ها عنوان شده است [۱۳، ۱۴].

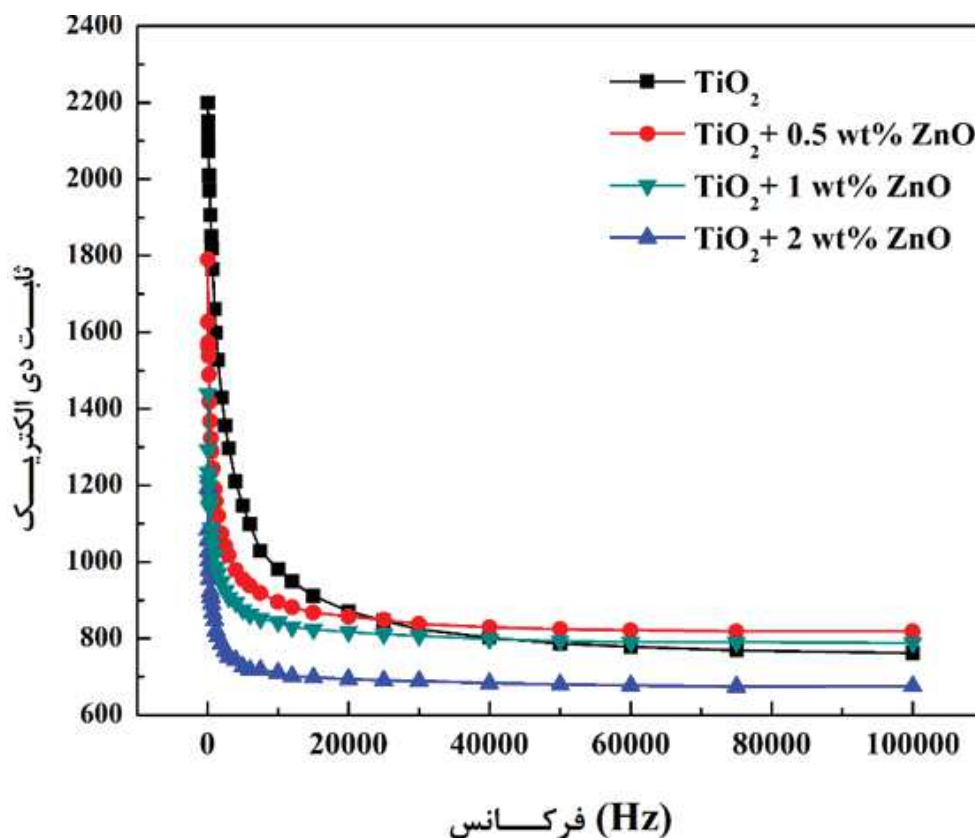
شکل ۲ تغییرات ثوابت شبکه کریستالی تیتانیوم بر حسب مقدار افزودنی ZnO حاصل از آنالیز ریتولد را نشان می دهد. افزودنی ZnO تاثیر زیادی بر مقادیر ثوابت کریستالی اکسید تیتانیوم خواهد داشت. افزایش مقدار افزودنی ZnO منجر به افزایش ثابت  $a$  به صورت چشمگیر و کاهش مقدار ثابت  $c$  خواهد شد. در نتیجه نسبت  $c/a$  (تتراگونالیت) ساختار تتراگونال اکسید تیتانیوم کاهش می یابد.



شکل ۲- تغییرات ثوابت شبکه کریستالی تیتانیوم بر حسب مقدار افزودنی ZnO

وابستگی ثابت دی الکتریک به فرکانس برای سرامیک اکسید تیتانیوم حاوی مقادیر متفاوت ZnO اندازه گیری شده در محدوده فرکانس ۵۰ تا ۱۰۰۰۰۰ هرتز در دمای اتاق در شکل ۳ آورده شده است. طبق شکل ۳ با افزایش فرکانس مقدار ثابت دی الکتریک کاهش می یابد. تشکیل دوقطبی ها در مواد دی الکتریک از طریق مکانیسم های قطبش صورت می گیرد. چهار مکانیسم اصلی ایجاد دوقطبی ها شامل الکترونی، یونی، مولکولی و بارفضایی هستند. فعال بودن این مکانیسم ها بستگی به فرکانس میدان اعمالی دارد. اندازه دو قطبی ها مختلف، متفاوت است، به گونه ای که دوقطبی های الکترونی اندازه کوچک در حد اتم دارند بنابراین در فرکانس های پایین و بالا فعال خواهند بود. مکانیسم قطبش بار فضایی در مرزهای بین دانه ای رخ می دهد. اندازه دوقطبی ها در قطبش بار فضایی نسبت به موارد دیگر بزرگ تر است و در فرکانس های پایین فعال هستند. در فرکانس های بالا، دوقطبی ها با اندازه بزرگ نمی توانند جهت قطب های خود را هماهنگ با میدان اعمالی تعویض کنند، بنابراین غیر فعال می شوند. پس با افزایش فرکانس، به دلیل غیرفعال شدن قطبش بار فضایی، مقدار ثابت دی الکتریک کاهش می یابد [۱۰]. خواص دی الکتریک سرامیک ها وابسته به فرکانس اعمالی است. این وابستگی در فرکانس های پایین بسیار بیش تر است به گونه ای که در محدوده فرکانس های پایین، با افزایش کمی در فرکانس ثابت دی الکتریک به شدت کاهش می یابد و در فرکانس های بالا، مقدار ثابت دی الکتریک تغییرات خیلی کمی با فرکانس خواهد داشت. طبق نتایج به دست آمده، افزودنی ZnO باعث کاهش ثابت دی الکتریک سرامیک اکسید تیتانیوم شده است و با افزایش مقدار افزودنی ZnO کاهش شدیدتری در ثابت دی الکتریک اکسید تیتانیوم صورت می گیرد. در شکل ۳ مشاهده می شود ثابت دی الکتریک نمونه های حاوی ۰/۵ و ۱ درصد وزنی ZnO از مقدار ثابت دی الکتریک اکسید تیتانیوم در

فرکانس‌های بالا کمی بیش‌تر است. کاهش در ثابت دی‌الکتریک اکسید تیتانیوم را می‌توان به ایجاد جاهای خالی اکسیژن و کاهش نسبت  $c/a$  در شبکه کریستالی آن در حضور افزودنی ZnO نسبت داده شود [۱۵].

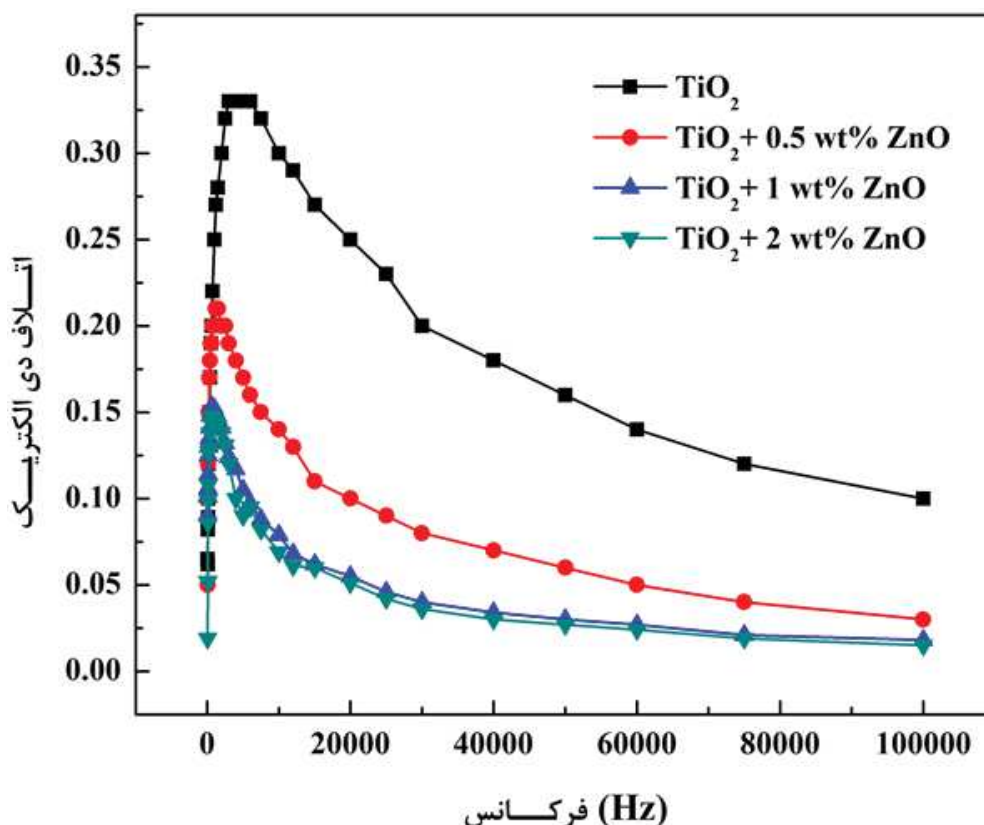


شکل ۳- وابستگی ثابت دی‌الکتریک به فرکانس سرامیک اکسید تیتانیوم حاوی مقادیر متفاوت ZnO

در شکل ۴ نتایج مربوط به وابستگی اتلاف دی‌الکتریک سرامیک اکسید تیتانیوم حاوی مقادیر متفاوت ZnO اندازه‌گیری شده در محدوده فرکانس ۵۰ تا ۱۰۰۰۰۰ هرتز در دمای اتاق نشان داده شده است. مشاهده می‌شود، اتلاف دی‌الکتریک در ابتدا با افزایش مقدار کمی در فرکانس به شدت افزایش می‌یابد و به یک مقدار بیشینه می‌رسد و سپس روند کاهشی با افزایش فرکانس خواهد داشت. طبق شکل ۴، افزودنی ZnO منجر به کاهش اتلاف دی‌الکتریک سرامیک اکسید تیتانیوم به صورت چشمگیری خواهد شد. با افزایش مقدار ZnO از ۰/۵ درصد به ۱ درصد، کاهش اتلاف دی‌الکتریک سرامیک اکسید تیتانیوم قابل توجه است. مقادیر اتلاف دی‌الکتریک برای دو نمونه حاوی ۱ و ۲ درصد افزودنی ZnO اختلاف زیادی با هم ندارند. به صورت رایج سرامیک‌ها با ثابت دی‌الکتریک بالا همراه با میزان اتلاف دی‌الکتریک بیشتری هستند [۴]. بنابراین کاهش در اتلاف دی‌الکتریک با استفاده از افزودنی ZnO را می‌توان به مقدار ثابت دی‌الکتریک کمتر در این نمونه‌ها نسبت داد.

در شکل ۵ تصاویر SEM مربوط به سطح شکست سرامیک اکسید تیتانیوم حاوی درصد متفاوت ZnO در دو بزرگنمایی متفاوت آورده شده است. در ریزساختار نمونه حاوی ۰/۵ درصد ZnO دانه‌های بزرگ در کنار دانه‌های ریزدانه وجود دارد و ریزساختار با توزیع غیریکنواخت از لحاظ اندازه دانه و پدیده رشد افراطی بعضی از دانه‌ها قابل مشاهده است. با افزایش مقدار افزودنی ZnO ریزساختار به سمت یکنواختی بیش‌تر و افزایش اندازه دانه پیش رفته است. هر دو پدیده یعنی رشد افراطی دانه و هم چنین رشد زیاد دانه‌ها در طی تفجوشی سرامیک‌ها به تفجوشی فاز مذاب نسبت داده می‌شود [۱۶]. بنابراین می‌توان نتیجه گرفت افزودنی ZnO می‌تواند منجر به تفجوشی فاز مذاب در سرامیک اکسید تیتانیوم گردد. در مقادیر کم افزودنی، مقدار فاز مذاب تشکیل شده در طی تفجوشی کم است و نمی‌تواند در کل ریزساختار نمونه به صورت یکنواخت توزیع شود. پس همه دانه‌ها رشد نمی‌کنند و باعث ایجاد ریزساختار دو مدلی یعنی دانه‌ها ریز در کنار دانه‌های درشت می‌شود. با افزایش مقدار افزودنی و در نتیجه افزایش فاز مذاب، امکان توزیع یکنواخت فاز مذاب در سرتاسر ریزساختار فراهم می‌شود و رشد همه دانه‌ها و ریزساختار یکنواخت حاصل



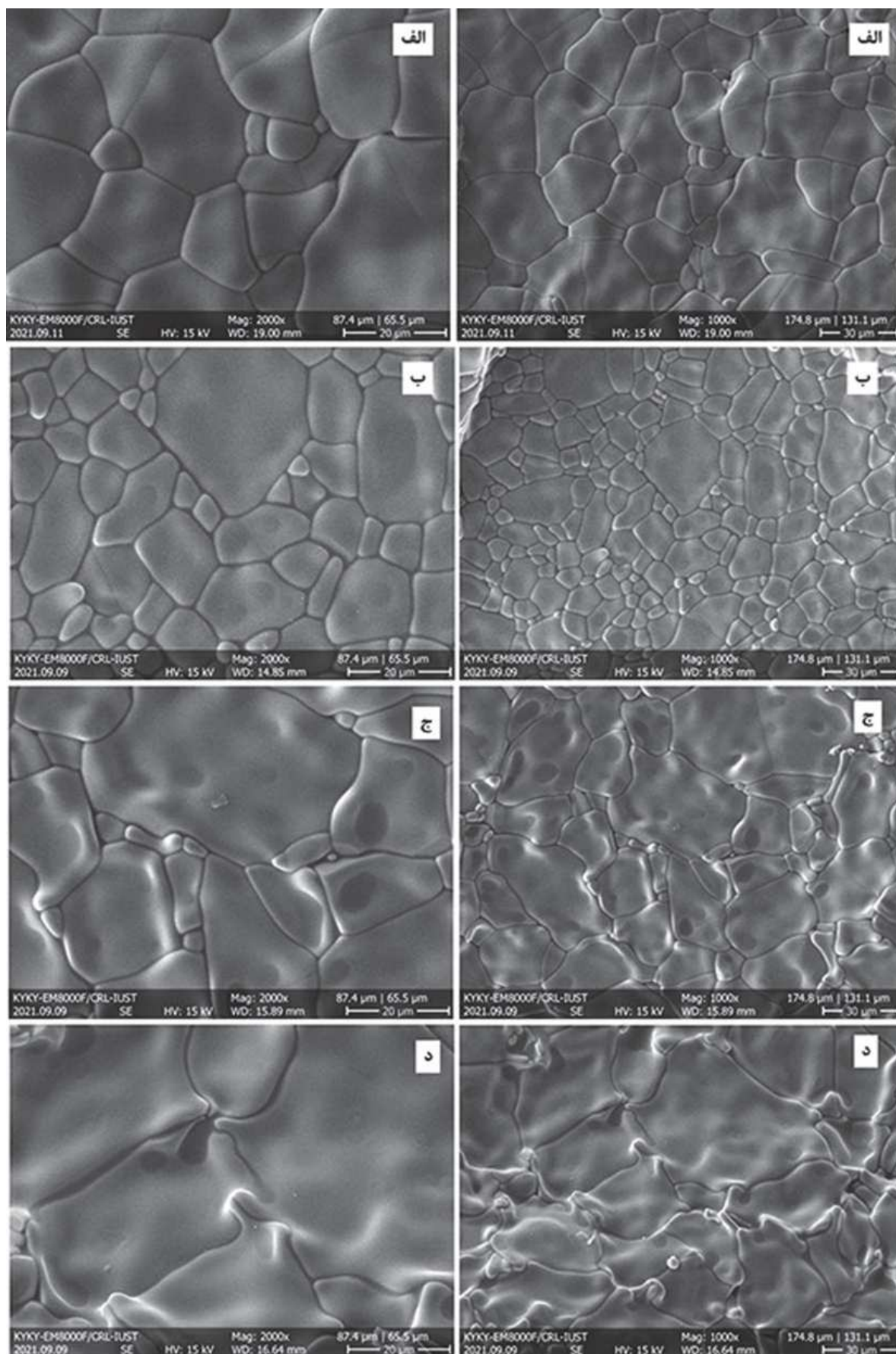


شکل ۴- وابستگی اتلاف دی الکتریک به فرکانس سرامیک اکسید تیتانیوم حاوی مقادیر متفاوت ZnO

در مورد سرامیک‌های دی الکتریک مشخص شده است اندازه دانه تاثیر زیادی بر خواص دی الکتریک آن‌ها خواهد داشت [۴]. وقتی اندازه دانه خیلی ریز است هر دانه می‌تواند مانند تک دومین در نظر گرفته شود و مرزهای دانه مانند دیواره دومین رفتار می‌کنند و چرخش دومین دشوار خواهد شد و منجر به افت خواص دی الکتریک به ویژه ثابت دی الکتریک می‌شود. وقتی اندازه دانه‌ها خیلی بزرگ باشد، درون هر دانه تعداد زیادی دومین با جهت‌گیری دوقطبی‌های متفاوت خواهد بود که در اینجا نیز چرخش دومین‌های زیاد درون یک دانه نیز دشوار می‌گردد و منجر به کاهش خواص دی الکتریک می‌شود. پس یک اندازه دانه بهینه برای دستیابی به خواص دی الکتریک مناسب گزارش می‌شود [۱۷]. بنابراین وجود ریزساختار با دانه‌های دو مدلی (ریز و درشت) در نمونه حاوی ۰/۵ درصد وزنی ZnO و وجود دانه‌هایی با اندازه بسیار بزرگ در نمونه‌های حاوی ۱ و ۲ درصد وزنی ZnO می‌تواند منجر به کاهش ثابت دی الکتریک سرامیک اکسید تیتانیوم با استفاده از افزودنی ZnO گردد.

#### ۴- نتیجه‌گیری

در این تحقیق به بررسی تاثیر افزودنی ZnO (در مقادیر ۰/۵، ۱ و ۲ درصد وزنی) بر خواص مختلف سرامیک اکسید تیتانیوم پرداخته شد. نتایج نشان داد افزودنی ZnO منجر به بهبود چگالش و افزایش چگالی سرامیک اکسید تیتانیوم می‌شود. فاز ناخالصی و ثانویه در الگوهای XRD در حضور افزودنی ZnO شناسایی نگردید. ثابت دی الکتریک و اتلاف دی الکتریک سرامیک اکسید تیتانیوم با افزایش مقدار افزودنی ZnO کاهش یافت که می‌تواند به ریزساختار غیر یکنواخت با اندازه دانه‌های بسیار بزرگ و امکان ایجاد جاهای خالی اکسیژن نسبت داده شود.



شکل ۵- تصاویر SEM از سطح شکست سرامیک الف) اکسید تیتانیوم، ب) حاوی ۰/۵ درصد ZnO، ج) حاوی ۱ درصد ZnO، و د) حاوی ۲ درصد ZnO



## مراجع

- [1] J. Li, F. Li, Y. Zhuang, L. Jin, L. Wang, X. Wei, Z. Xu, S. Zhang, "Microstructure and dielectric properties of (Nb+ In) co-doped rutile TiO<sub>2</sub> ceramics", Journal of applied physics, 2014, 116 [7] 074105.
- [2] L. Zhao, J. Wang, Z. Gai, J. Li, J. Liu, J. Wang, C. Wang, X. Wang, "Annealing effects on the structural and dielectric properties of (Nb+ In) co-doped rutile TiO<sub>2</sub> ceramics", RSC advances, 2019, 9 [15] 8364-8368.
- [3] S. Ruzgar, S.A. Pehlivanoglu, "The effect of Fe dopant on structural, optical properties of TiO<sub>2</sub> thin films and electrical performance of TiO<sub>2</sub> based photodiode", Superlattices and Microstructures, 2020, 145, 106636.
- [4] Z. Li, J. Wu, D. Xiao, J. Zhu, W. Wu, "Colossal permittivity in titanium dioxide ceramics modified by tantalum and trivalent elements", Acta Materialia, 2016, 103, 243-251.
- [5] W. Dong, W. Hu, A. Berlie, K. Lau, H. Chen, R.L. Withers, Y. Liu, "Colossal dielectric behavior of Ga+ Nb co-doped rutile TiO<sub>2</sub>", ACS applied materials & interfaces, 2015, 7 [45] 25321-25325.
- [6] C. Yang, M.Y. Tse, X. Wei, J. Hao, "Colossal permittivity of (Mg+ Nb) co-doped TiO<sub>2</sub> ceramics with low dielectric loss", Journal of Materials Chemistry C, 2017, 5 [21] 5170-5175.
- [7] W. Hu et al., "Electron-pinned defect-dipoles for high-performance colossal permittivity materials", Nature materials, 2013, 12 [9].821-826.
- [8] Y. Yu, Y. Zhao, T.D. Zhang, R.X. Song, Y.L. Zhang, Y.L. Qiao, W.L. Li, W.D. Fei, "Low dielectric loss induced by coupling effects of donor-acceptor ions in (Nb+ Al) co-doped rutile TiO<sub>2</sub> colossal permittivity ceramics", Ceramics International, 2018, 44 [6] 6866-6871.
- [9] W. Tuichai, S. Danwittayakul, N. Chanlek, P. Thongbai, S. Maensiri, "High-performance giant-dielectric properties of rutile TiO<sub>2</sub> co-doped with acceptor-Sc<sup>3+</sup> and donor-Nb<sup>5+</sup> ions", Journal of Alloys and Compounds, 2017, 703, 139-147.
- [10] M. Barsoum, M.W. Barsoum, Fundamentals of Ceramics, CRC press, 2002.
- [11] B.D. Cullity, S.R. Stock, Elements of X-ray diffraction, third ed., Pearson new international edition, 2014.
- [12] H. Moradi, A. Eshaghi, S. R. Hosseini, K. Ghani, "Fabrication of Fe-doped TiO<sub>2</sub> nanoparticles and investigation of photocatalytic decolorization of reactive red 198 under visible light irradiation", Ultrasonics sonochemistry, 2016, 32, 314-319.
- [13] M. Sahu, P. Biswas, "Single-step processing of copper-doped titania nanomaterials in a flame aerosol reactor", Nanoscale research letters, 2011, 6 [1] 1-14.
- [14] J.W. Yeh, S.Y. Chang, Y.D. Hong, S.K. Chen, S.J. Lin, "Anomalous decrease in X-ray diffraction intensities of Cu-Ni-Al-Co-Cr-Fe-Si alloy systems with multi-principal elements", Materials chemistry and physics, 2007, 103 [1] 41-46.
- [15] W. Tuichai, N Thongyong, S. Danwittayakul, N. Chanlek, P. Srepusharawoot, P. Thongbai, S. Maensiri, "Very low dielectric loss and giant dielectric response with excellent temperature stability of Ga<sup>3+</sup> and Ta<sup>5+</sup> co-doped rutile-TiO<sub>2</sub> ceramics", Materials & Design, 2017, 123, 15-23.
- [16] M. N. Rahaman, Ceramic Processing and Sintering, New York: Marcel Dekker, 1995.
- [17] R. Hayati, A. Barzegar, "Microstructure and electrical properties of lead free potassium sodium niobate piezoceramics with nano ZnO additive", Materials Science and Engineering: B, 2010, 172 [2] 121-126.





# Investigation of Zinc Oxide Additive on the Dielectric Properties and Microstructure of Titanium Oxide Ceramic

Sanaz Hami, Hajar Ahmadi Moghadam\*

Department of Materials Engineering, Faculty of Engineering, Shahrekord University, Shahrekord

\*hajar.ahmadi@sku.ac.ir

**Abstract:** In recent years, research into materials with high dielectric constants, including doped titanium oxide, has increased because of the potential for modern microelectronics applications and high-density energy storage. The aim of this study was to investigate the effects of zinc oxide as an acceptor additive on the dielectric properties and microstructure of titanium oxide ceramics. The amount of 0.5, 1 and 2 wt% of the additive was added to the titanium oxide and the samples were prepared by powder pressing method and then sintered at 1420°C for 5 hours. The properties of the samples including density, phases, dielectric constant, dielectric loss and microstructure were investigated. The results showed that zinc oxide improved the density of titanium oxide. The results of X-ray diffraction test showed that there was no secondary phase and impurities in the samples containing the additive, which could indicate the replacement of the additive in the crystalline lattice of titanium oxide and the formation of a solid solution. The addition of zinc oxide resulted in the decreasing of dielectric constant and dielectric loss of titanium oxide. Zinc oxide additive caused grain growth and increase of grain size of titanium oxide ceramic. Microstructures with very large grain sizes and the possibility of creating oxygen vacancy with using zinc oxide additives can lead to the reduction in the dielectric constant of the titanium oxide ceramic.

**Keywords:** Titanium oxide, Zinc oxide, Density, Dielectric constant, Microstructure.